



IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE  
Group Art Unit 1774

In re

Patent Application of

Andreas Richter et al.

Application No. 10/784,149

Confirmation No. 5352

Filed: February 20, 2004

Examiner: Marie Rose Yamnitzky

“ORGANIC ELECTROLUMINESCENT  
DEVICE BASED ON 2,5-  
DIAMINOTEREPHTHALIC ACID  
DERIVATIVES”

I, Nanci A. Musich, hereby certify that this correspondence is being deposited with the US Postal Service as first class mail in an envelope addressed to Commissioner for Patents, P.O. Box 1450, Alexandria, VA 22313-1450, on the date of my signature.

Signature

FEBRUARY 21, 2006

Date

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

Enclosed is the priority document for German Patent Application 101 41 266.5, filed August 21, 2001, to which the above-identified U. S. patent application claims priority.

Respectfully submitted,

Gregory J. Hartwig  
Reg. No. 46,761

File No. 085516-9012-01

Michael Best & Friedrich LLP  
100 East Wisconsin Avenue, Suite 3300  
Milwaukee, Wisconsin 53202-4108  
414.271.6560

X:\clientb\085516\9012\A1482308.1

# BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

**Aktenzeichen:** 101 41 266.5

**Anmeldetag:** 21. August 2001

**Anmelder/Inhaber:** Sensient Imaging Technologies GmbH,  
06766 Wolfen/DE

**Erstanmelder:** SynTec Gesellschaft für Chemie und  
Technologie der Informationsaufzeichnung mbH,  
06766 Wolfen/DE

**Bezeichnung:** Elektrolumineszierende Derivate der 2,5-  
Diaminoterephthalsäure und deren Verwendung in  
organischen Leuchtdioden

**IPC:** C 07 D, H 01 L, C 09 K

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 26. Januar 2006  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident

Im Auftrag

Waller

A 9  
03/00  
EDV-L

BEST AVAILABLE COPY

## Elektrolumineszierende Derivate der 2,5-Diaminoterephthalsäure und deren Verwendung in organischen Leuchtdioden



### Beschreibung

Gegenstand der Erfindung sind Emittersubstanzen für organische Leuchtdioden (OLED). In organischen Leuchtdioden wird die Elektrolumineszenz von bestimmten organischen Verbindungen ausgenutzt. Der Aufbau und die Aufgaben der einzelnen Schichten in einer OLED ist beispielhaft in Abb. 1 skizziert:



- 1 Kathode (z. B. Aluminium)
- 2 Pufferschicht (u. B. 0.5 nm, z. B. LiF)
- 3 Elektronenleiter (z. B. 30 nm Alq<sub>3</sub>, ggf. dotiert)
- 4 Lochleiter (z. B. 5 nm  $\alpha$ -NPD)
- 5 Lochleiter (z. B. 55 nm 1-NAPHDATA)
- 6 Anode (z. B. ITO)
- 7 Träger (z. B. Glas)

Abb. 1

Zwischen zwei Elektroden, von denen mindestens eine lichtdurchlässig sein muß, befindet sich eine Schichtfolge von organischen Substanzen, die im Device jeweils eine spezielle Funktion haben.

1. die Kathode besteht aus einem unedlen Metall oder einer Legierung (z. B. Aluminium oder Calcium); verantwortlich für die Elektroneninjektion
2. die Pufferschicht aus bestimmten Metallsalzen oder deren Oxiden, wie z. B. LiF; verantwortlich für Verbesserung der Elektroneninjektion in die Schicht 3
3. der Elektronenleiter kann z. B. aus Alq<sub>3</sub> bestehen; leitet die Elektronen von der Kathode in das Innere des Devices zur Emissionsschicht bzw. dem Lochleiter
4. der Lochleiter besteht vorrangig aus Derivaten des Triphenylamins; es können mehrere Lochleiterschichten vorhanden sein, deren Eigenschaften auf das Device abgestimmt sind; verantwortlich für den Transport der Löcher zur Emissionsschicht
5. die Anode besteht aus ITO, das die Löcher in die Lochtransportschicht injiziert
6. der Träger besteht aus einem transparenten Material, z. B. Glas

Die in Abbildung skizzierte Anordnung emittiert grünes Licht, das durch die Anregung des Alq3 durch die aus den Löchern und Elektronen gebildeten Excitonen entsteht.

Eine solche einfache Anordnung besitzt jedoch Nachteile:

1. Alq3 emittiert nur im grünen Spektralbereich
2. die Emission von Alq3 ist zu breitbandig

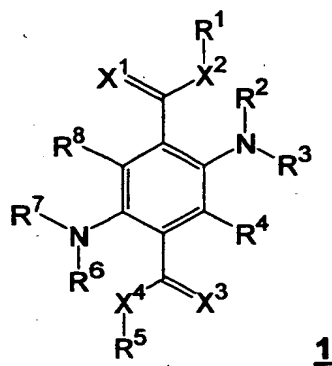
Diese Nachteile lassen sich durch sog. Dotieren z. T. beseitigen. Dabei wird im Herstellungsprozeß der Diode eine oder mehrere Substanzen co-verdampft. Der Gehalt an diesen Substanzen in der Alq3-Schicht beträgt in der Regel nur wenige Prozent.

Dieser Co-Verdampfungsprozeß ist schwierig zu steuern.

Die Erfindung bezieht sich auf neue Emittersubstanzen, welche die bekannten Nachteile von Alq3 als Emitter- und Hostmaterial für Dopanden beseitigt. Die neuen Emittersubstanzen zeichnen sich aus durch

1. schmalere Emissionsbanden;
2. Abdeckung eines breiten Spektralbereiches in den Devices durch Einsatz unterschiedlicher Vertreter, entweder in voneinander getrennten Schichten oder in Mischschichten;
3. niedrige Treiberspannungen;
4. hohe photometrische Effizienz (niedrige Leistungsaufnahme);
5. hohe Leuchtdichten;
6. hohe thermische Stabilität.

Erfindungsgemäß handelt es sich um Verbindungen der allgemeinen Formel 1.



Wobei

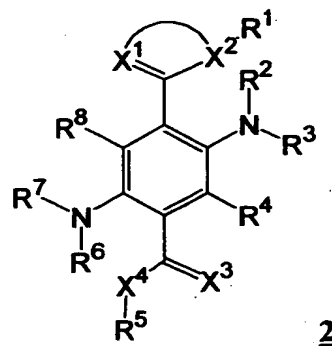
$X^1$  und  $X^3$  gleiche oder ungleiche Atome oder Gruppen, wie Sauerstoff, Schwefel, Imino, vorzugsweise Sauerstoff, sein können;

$X^2$  und  $X^4$  gleiche oder ungleiche Atome oder Gruppen, wie Sauerstoff, Schwefel, Amino, wobei der Aminostickstoff substituiert sein kann, sein können;

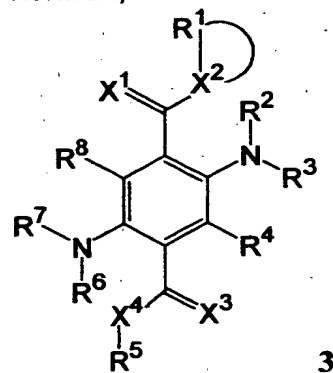
$R^{1-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B. Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;

$R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein können;

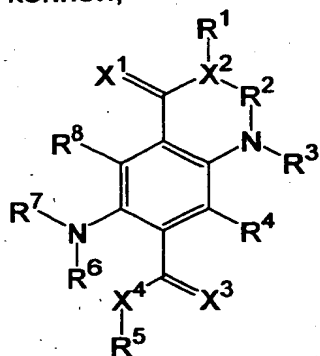
$X^1$  und  $X^2$  Glieder eines Ringes sein können;



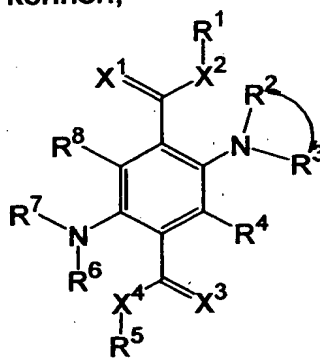
$X^2$  und  $R^1$  Glieder eines Ringes sein können;



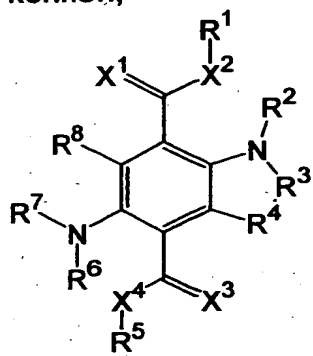
$X^2$  und  $R^2$  Glieder eines Ringes sein können;



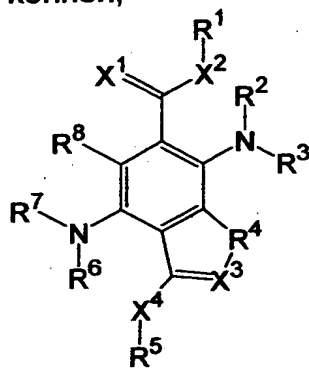
$R^2$  und  $R^3$  Glieder eines Ringes sein können;



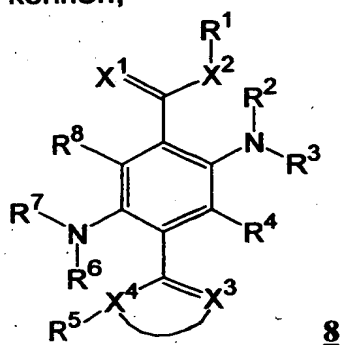
$R^3$  und  $R^4$  Glieder eines Ringes sein können;



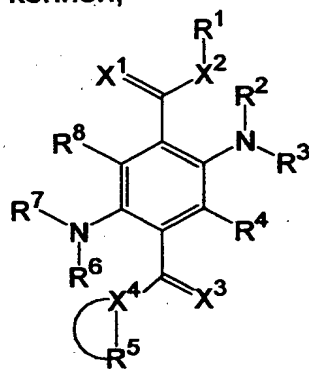
$R^4$  und  $X^3$  Glieder eines Ringes sein können;



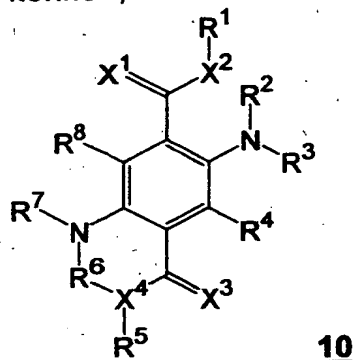
$X^3$  und  $X^4$  Glieder eines Ringes sein können;



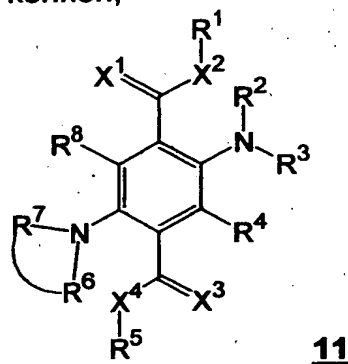
$X^4$  und  $R^5$  Glieder eines Ringes sein können;



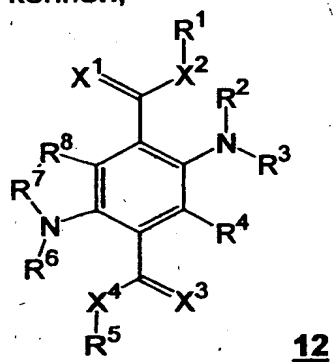
$X^4$  und  $R^6$  Glieder eines Ringes sein können;



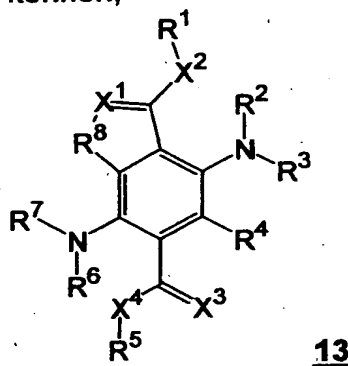
$R^6$  und  $R^7$  Glieder eines Ringes sein können;



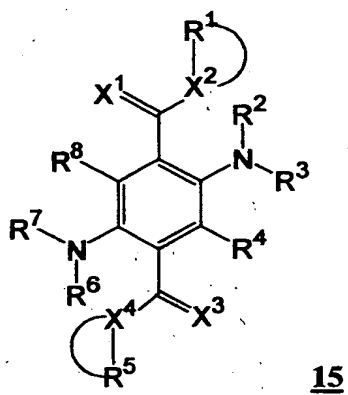
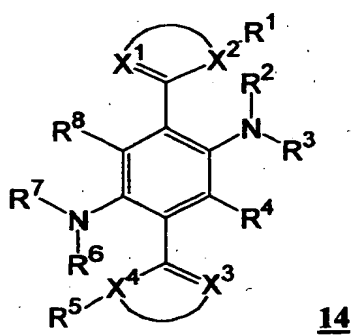
$R^7$  und  $R^8$  Glieder eines Ringes sein können;

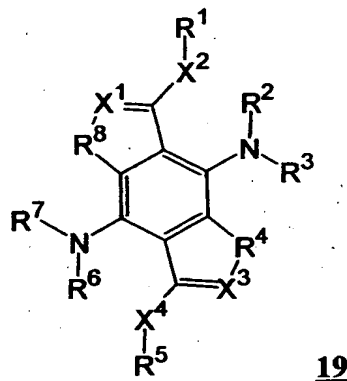
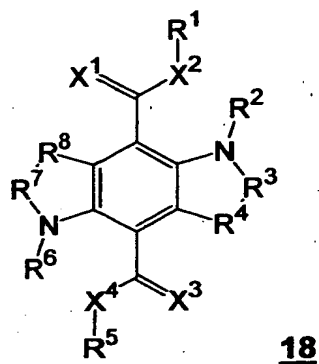
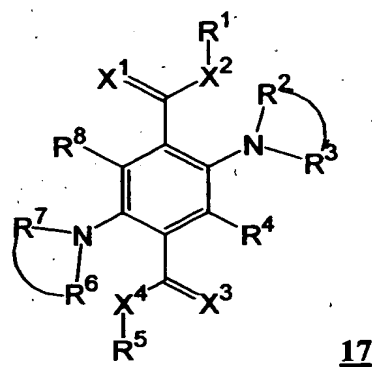
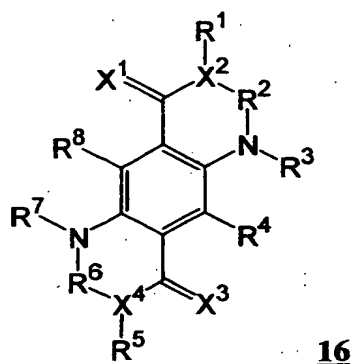


$R^8$  und  $X^1$  Glieder eines Ringes sein können;



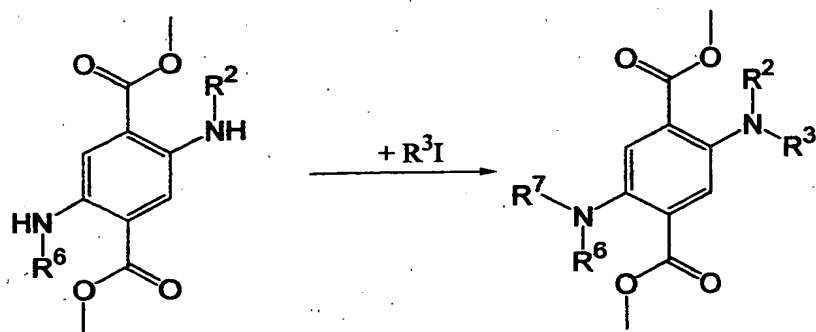
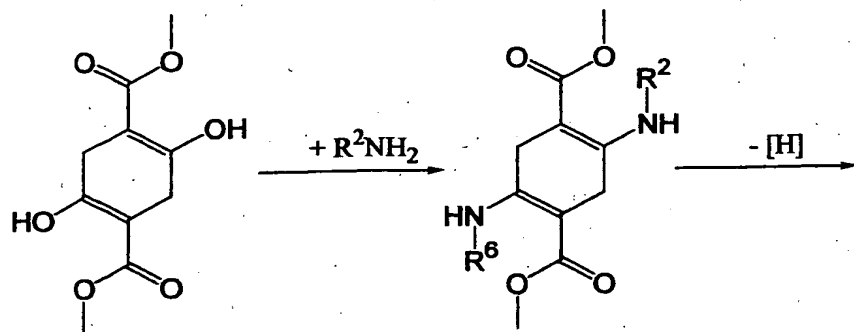
Wobei es sich bevorzugt um die symmetrischen Kombinationen dieser Strukturtypen handelt



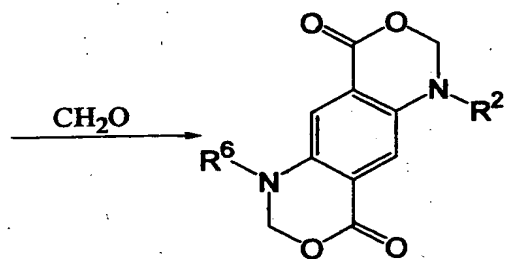
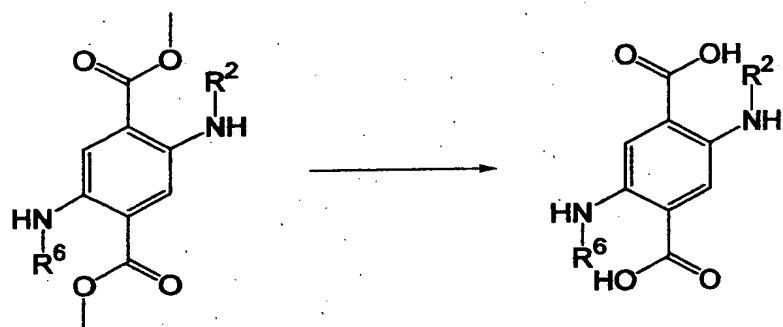


Die Emittersubstanzen der Formel 1 können ausgehend von Cyclohexan-2,5-dion-1,4-dicarbonsäureestern durch Umsetzung mit primären Anilinen bzw. Aminen, anschließender Oxidation und gegebenenfalls weiterer Abwandlung als Derivate der 2,5-Diamino-terephthalsäure erhalten werden. Cyclisierte Derivate können daraus in an sich bekannter Weise hergestellt werden, wie z. B. in Formelschema I und II gezeigt.

# Belegexemplar



Formelschema I : Synthese der offenen Verbindungen

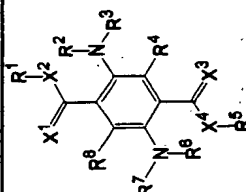
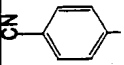
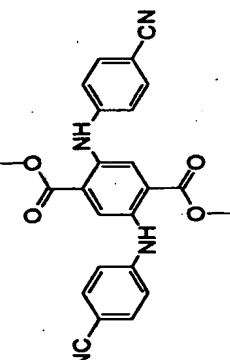
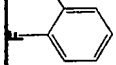
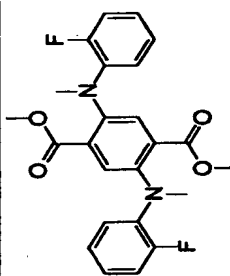
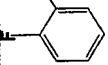
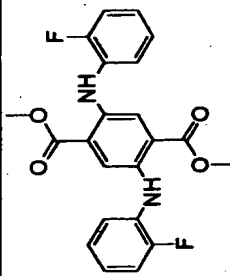
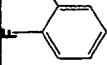


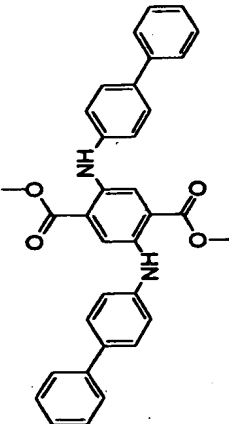
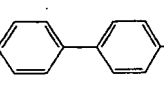
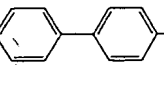
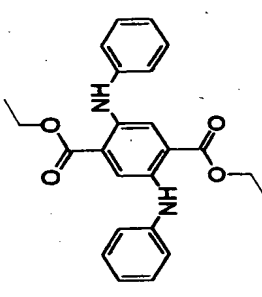
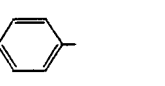
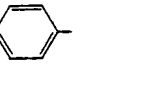
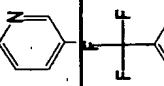
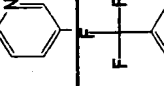
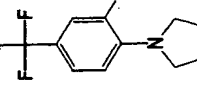
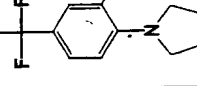
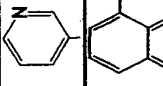
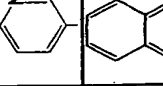
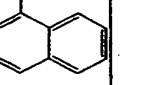
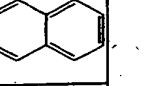
Formelschema II : Synthese der cyclisierten

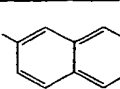
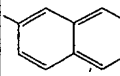
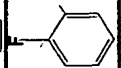
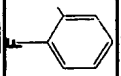
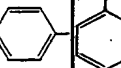
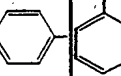
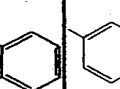
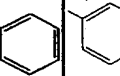
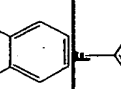
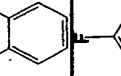
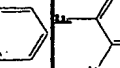
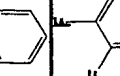
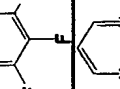
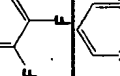

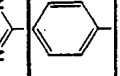


Verbindungen

















































Beispiele für die neuen Emitter entsprechend Formel 1 sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

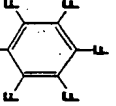
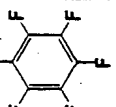
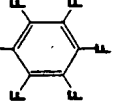


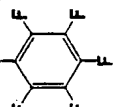
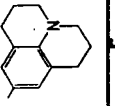
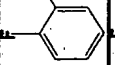
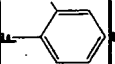
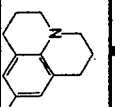
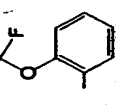
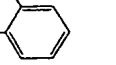
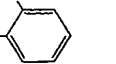
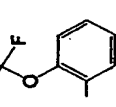
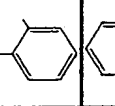
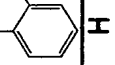
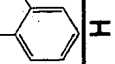
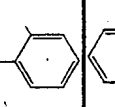
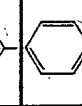



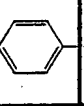



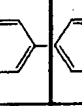





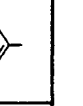











Tabelle 1:

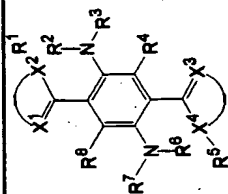
Substanz	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>3</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>7</sup>
 <p>1.0</p>	O	O		-CH <sub>3</sub>	H	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	H	
 <p>1.1</p>	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
 <p>1.2</p>	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
 <p>1.3</p>	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	

Substanz	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>3</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>7</sup>
 1.4	O	O		-CH <sub>3</sub>	H	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	
 1.5	O	O		-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	
 1.6	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	
 1.7	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	
 1.8	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	
 1.9	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	

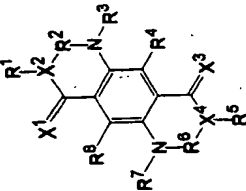
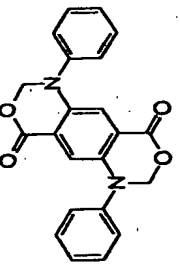

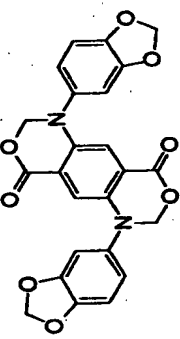
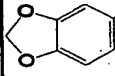
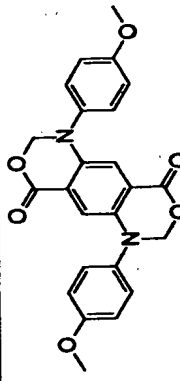
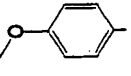
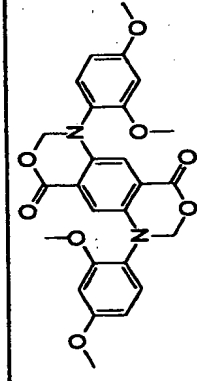
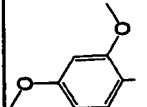
Substanz	X'	X <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>	R'	R <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>	X <sup>2</sup>	X <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>
1.10	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
1.11	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
1.12	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
1.13	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
1.14	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
1.15	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
1.16	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
1.17	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
1.18	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	

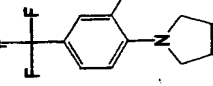
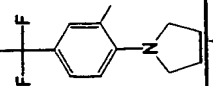
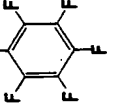
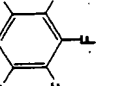
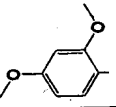
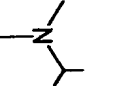
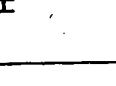
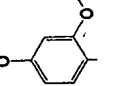
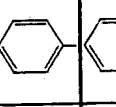
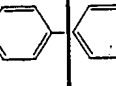
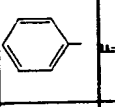
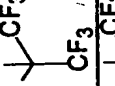

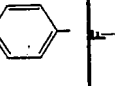
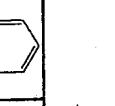
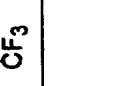


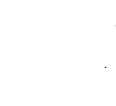







Substanz	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	X <sup>3</sup>	X <sup>4</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>4</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>7</sup>
1.19	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
1.20	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
1.21	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
1.22	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
1.23	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
1.24	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
1.25	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
1.26	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			
	O	O	-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>			

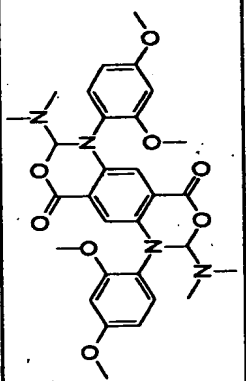
Substanz	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>3</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>7</sup>
1.27	O	O		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
1.28	O	O		-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>		
1.29	O	O		-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>		
1.30	O	O		-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>		
1.31				-CH <sub>3</sub>		H	O	O	H	-CH <sub>3</sub>		
1.32	O	N			H	H	N	O	H		H	
1.33	O	N			H	H	N	O	H		H	
1.34	O	O		-CH <sub>3</sub>			O	O		-CH <sub>3</sub>		
1.35	O	O		-CH <sub>3</sub>			O	O		-CH <sub>3</sub>		
1.36	O	O		-CH <sub>3</sub>			O	O		-CH <sub>3</sub>		

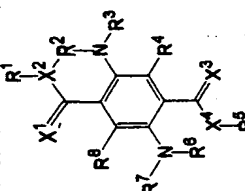
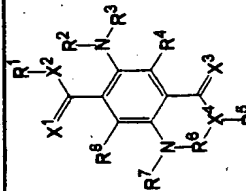
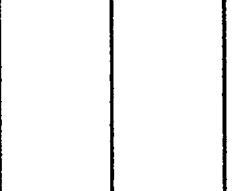


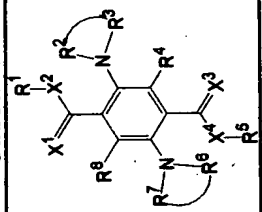


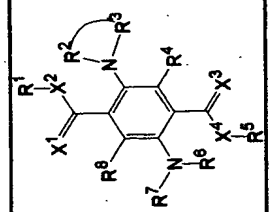
Substanz	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>3</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>7</sup>
 <b>16.0</b>													
 <b>16.1</b>	O	O		-CH <sub>2</sub> -	-	H	O	O	O	H	-CH <sub>2</sub> -	-	
 <b>16.2</b>	O	O		-CH <sub>2</sub> -	-	H	O	O	O	H	-CH <sub>2</sub> -	-	
 <b>16.3</b>	O	O		-CH <sub>2</sub> -	-	H	O	O	O	H	-CH <sub>2</sub> -	-	
 <b>16.4</b>	O	O		-CH <sub>2</sub> -	-	H	O	O	O	H	-CH <sub>2</sub> -	-	

Substanz	X'	X <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>3</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>7</sup>
16.5	O	O		-CH <sub>2</sub> -	-	H	O	O	H	-CH <sub>2</sub> -	-	-	
	O	O		-CH <sub>2</sub> -	-	H	O	O	H	-CH <sub>2</sub> -	-	-	
16.6	O	O			-	H	O	O	H		-	-	
	O	O		-CF <sub>2</sub> -	-	H	O	O	H	-CF <sub>2</sub> -	-	-	
16.7	O	O			-	H	O	O	H		-	-	
16.8	O	O			-	H	O	O	H		-	-	
16.9	O	O			-	H	O	O	H		-	-	
16.10	O	O			-	H	O	O	H		-	-	



Substanz	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>3</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>7</sup>
											
	O	O		-CH <sub>2</sub> -		H	O	O	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	
	O	O		-CH <sub>2</sub> -		H	N	O		-CH <sub>3</sub>	
											
	O	O		-CH <sub>2</sub> -		H	N	O	-CH <sub>2</sub> -	-CH <sub>2</sub> -	
	O	O		-CH <sub>2</sub> -		H	N	O	-CH <sub>2</sub> -	-CH <sub>2</sub> -	
											
	O	O		-CH <sub>2</sub> -		H	N	O	-CH <sub>2</sub> -	-CH <sub>2</sub> -	
	O	O		-CH <sub>2</sub> -		H	N	O	-CH <sub>2</sub> -	-CH <sub>2</sub> -	

Substanz	X <sup>1</sup>	R <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>5</sup>	X <sup>3</sup>	X <sup>4</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>7</sup>	R <sup>8</sup>
												
17.0	O	-CH <sub>3</sub>	O			H	-CH <sub>3</sub>	O	O			H
17.1	O	-CH <sub>3</sub>	O			H	-CH <sub>3</sub>	O	O			H
17.2	O	-CH <sub>3</sub>	O			H	-CH <sub>3</sub>	O	O			H
17.3	O	-CH <sub>3</sub>	O			H	-CH <sub>3</sub>	O	O			H
17.4	O	-CH <sub>3</sub>	O			H	-CH <sub>3</sub>	O	O			H
5.0	O	-CH <sub>3</sub>	O			H	-CH <sub>3</sub>	O	O			H
5.1	O	-CH <sub>3</sub>	O			H	-CH <sub>3</sub>	O	O			H
5.2	O	-CH <sub>3</sub>	O			H	-CH <sub>3</sub>	O	O			H
5.3	O	-CH <sub>3</sub>	O			H	-CH <sub>3</sub>	O	O			H








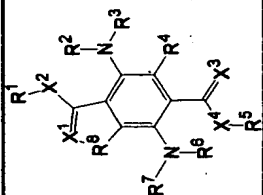


Substanz	R <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	X <sup>1</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>5</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>3</sup>	R <sup>6</sup>	R <sup>7</sup>	R <sup>8</sup>
15.4			O	H		-CH <sub>3</sub>			O	H		-CH <sub>3</sub>
3.0												
3.1			O	H		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	O	O	H		-CH <sub>3</sub>
3.2			O	H								
9.0												
9.1		-CH <sub>3</sub>	O	H		-CH <sub>3</sub>			O	H		H
9.2		-CH <sub>3</sub>	O	H					O	H		-CH <sub>3</sub>

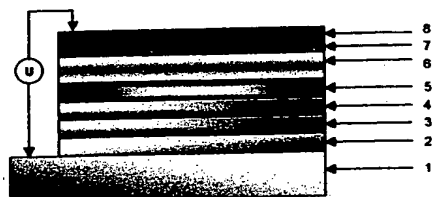


[illegible][illegible]

Substanz	X <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>3</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	X <sup>4</sup>	R <sup>7</sup>	R <sup>8</sup>	X <sup>1</sup>	R <sup>1</sup>
7.2	O					-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	O		H	O	-CH <sub>3</sub>
13.0												
13.1	O			H	O	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	O				-CH <sub>3</sub>



Die neuen Emmitter werden in einem Device mit oder ohne einer Elektronentransportschicht verwendet, wobei die Schichten in einem Device wie in Bild 2 angegeben angeordnet sein können:



- 8 Elektrode (z. B. Aluminium)
- 7 Pufferschicht (z. B. 0.5 nm LiF)
- 6 Elektronenleiter (z. B. 30 nm Alq<sub>3</sub>)
- 5 Emitterschicht (z. B. 5 nm Terephthalsäurederivat)
- 4 Lochleiter (z. B. 5 nm  $\alpha$ -NPD)
- 3 Lochleiter (z. B. 55 nm 1-Naphdata)
- 2 Anode (z. B. ITO)
- 1 Substrat (z. B. Glas)

Abb. 2

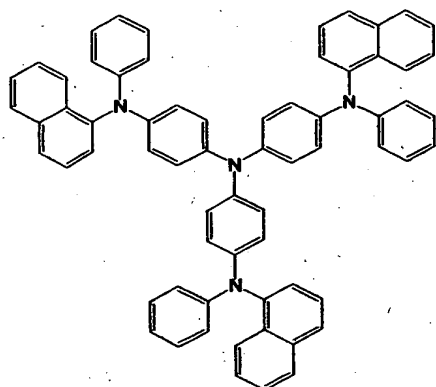
Typische Schichtdicken für die Emmitter sind 3 - 10 nm, vorzugsweise 4 - 6 nm.

Die Emissionswellenlängen hängen in charakteristischer Weise von der chemischen Struktur ab, wobei offensichtlich elektronische und sterische Faktoren der Moleküle einen Einfluß auf die Wellenlänge des emittierten Lichts und der erreichten Performance haben. Für die in Tab 2 gezeigten Beispiele liegen die Emissionswellenlängen zwischen 538 nm und 618 nm.

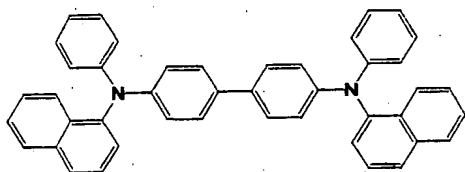
Zum Erreichen von Mischfarben können die neuen Emmitter der Formel 1.0 - 19.0 in mehreren Schichten der jeweils reinen Materialien übereinander (Abb. 2) oder im Gemisch in einer oder mehreren Schichten angeordnet werden.

Schichten der neuen Emmitter der Formel 1.0 - 19.0 können durch bekannte Emitttermaterialien dotiert werden, wie in Abb. 1 gezeigt wird.

Die neuen Emmitter der Formel 1.0 - 19.0 können in Devices mit an sich bekannten Lochleitern (21 u. 22) und anderen Komponenten verwendet werden. Typische Beispiele zeigen die Abb. 1 und 2.

**21**

4,4',4''-Tris(N-(α-naphthyl)-N-phenylamino)-triphenylamin (1-NAPHDATA)

**22**

N,N'-Di(α-naphthyl)-N,N'-diphenylbenzidin (α-NPD)

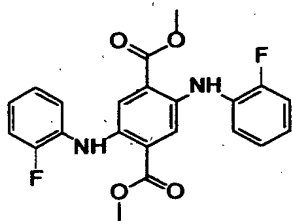
Die Devices auf der Basis der neuen Emittler können in an sich bekannter Weise durch Aufdampfen im Vakuum zwischen 1 und  $10^{-9}$  Torr hergestellt werden.

Eine weitere Möglichkeit zur Herstellung der Devices besteht im Coating aus der Lösung, z. B. Webcoating oder Spincoating. Dabei können die neuen Emittler der Formeln **1.0** - **19.0** sowohl in als reine Substanz oder als Dopand in einem geeigneten Polymer aufgetragen werden.

Überraschend wurde gefunden, daß insbesondere mit fluorsubstituierten Vertretern der Formel **1.0** besonders effiziente Devices hergestellt werden können. Es zeigt sich in diesen Fällen eine bemerkenswert hohe photometrische. Mit der Substanz **1.2** wird ein Device realisiert, welches ein spektral nahezu reines grün ausstrahlt.

### Experimenteller Teil

Die folgenden Beispiele sollen die Erfindung näher beschreiben, stellen aber keine Beschränkung dar.

Beispiel 1 (Substanzen 1.1, 1.3 – 1.5)

In einem Gemisch aus 200 ml Eisessig und 200 ml Alkohol (entsprechend der Esterkomponente) werden 0.06 mol Cyclohexan-2,5-dion-1,4-dicarbonsäurediester suspendiert. Unter Stickstoff werden 0.135 mol eines primären Amins bzw. Anilins zügig zugesetzt. Das Reaktionsgemisch wird unter intensivem Rühren 5 – 8 h unter Rückfluß erhitzt. Die akzeptorsubstituierten Aniline erfordern eine Verlängerung der Reaktionszeiten.

Zur Isolierung des Rohprodukts genügt es im Falle der Aniline, die abgekühlte Reaktionsmischung abzusaugen, mit Methanol intensiv zu waschen und zu trocknen. Aliphatische Amine bilden Produkte von hoher Löslichkeit, so daß zunächst, sämtliches Lösungsmittel weitestgehend am Rotationverdampfer abgetrennt werden muß. Das Rohprodukt wird in Methanol aufgenommen und nach starker Kühlung abgesaugt und getrocknet.

Die so erhaltenen Dihydroterephthalsäureester werden oxidiert. Die Isolierung gelingt mit Ausbeuten bis zu 95%. Das abgetrennte Rohprodukt kann zur Reinigung aus DMF, Toluol, Chloroform oder Methanol umkristallisiert werden. Die Substanzen sind sublimierbar.

Beispiel 2 (Substanz 16.1 – 16.4, 16.7)

Die nach Beispiel 1 erhaltenen Ester werden in Gemischen aus n-Propanol und Wasser verseift. Vom Terephthalsäurediester werden 0.01 mol in etwa 50 ml n-Propanol suspendiert und mit 50 ml Wasser, das 0.03 mol Kaliumhydroxid enthält, versetzt. Die Suspension wird unter Rückfluß erhitzt bis eine klare Lösung entstanden ist. Nach weiteren 2 h wird abgesaugt. Zur Neutralisation werden in die Lösung etwa 5 ml Eisessig getropft. Die anfallende Säure wird mit Methanol gewaschen und getrocknet.

Zur Herstellung der Substanzen 16.1 – 16.4 wurden 0.01 mol der hier hergestellten Terephthalsäure in 100 ml Eisessig unter Zusatz von 15 ml Formaldehydlösung (37%) 2 h unter Rückfluß erhitzt.

Die Substanz 16.7 wurde erhalten, indem man 0.01 mol der entsprechenden Terephthalsäure in Toluol suspendiert und mit 0.08 mol N, N-Dimethylformamiddimethylacetal 2 h unter Rückfluß erhitzt.

Die Reaktionsprodukte werden abgetrennt und mit Methanol gewaschen. Es wird aus Acetonitril oder Chloroform umkristallisiert. Die Substanzen können durch Sublimation gereinigt werden.

### Beispiel 3 (Substanz 1.2)

Um Verbindungen dieses Typs herzustellen kann der entsprechende Terephthalsäureester (Beispiel 1) alkyliert werden. In 350 ml wasserfreien DMSO werden 0.05 mol Terephthalsäureester suspendiert und mit 18.63 g (0.131 mol) Methyljodid versetzt. Bei einer Temperatur zwischen 20 und 23°C werden portionsweise unter starkem Rühren 6.1 g (0.152 mol) 60%iges Natriumhydrid in Paraffin hinzugefügt. Nach ca. 5 h Reaktionszeit hat sich ein Farbumschlag der festen Bestandteile von orange nach rein gelb vollzogen. Zu diesem Gemisch werden nun ca. 200 ml Methanol gegeben, was die Filtrierbarkeit wesentlich verbessert.

Das abgetrennte gelbe Reaktionsprodukt wird mit Methanol intensiv gewaschen und getrocknet. Ein reines Produkt wird durch Umkristallisation aus Toluol erhalten.

### Beispiel 4 (Device: Substanz 16.4)

Auf einen strukturierten ITO-Glasträger von 50 × 50 mm<sup>2</sup> wurde eine Schicht von 55 nm 4,4',4''-Tris(N-(α-naphthyl)-N-phenylamino)-triphenylamin und eine weitere von 5 nm Stärke aus N,N'-Di(α-naphthyl)-N,N'-diphenylbenzidin aufgedampft. Auf diesen Lochtransportschichten werden 5 nm 1,6-Bis(2,4-dimethoxyphenyl)-benzo[1,2-d;4,5-d']-1,2,6,7-tetrahydro-bis[1,3]oxazin-4,9-dion (16.4) abgeschieden.

Über dieser Emitterschicht wird nun zusätzlich Tris-(8-hydroxychinolino)-aluminium mit einer Schichtdicke von 30 nm aufgebracht und darüber zunächst eine sehr dünne Pufferschicht (0.5 nm) Lithiumfluorid und abschließend Aluminium aufgedampft.

Der Test dieser Anordnung erfolgte bei einer regelbaren Spannung zwischen 0 und 15 V. Diese Vorrichtung emittiert bei 578 nm (gelb). Eine Leuchtdichte von 100 cd/m<sup>2</sup> wurde bei 5.0 V erreicht. Maximal wurde eine Leuchtdichte von 11400 cd/m<sup>2</sup> erreicht.

#### Beispiel 5 (Device: Substanz 16.7)

Entsprechend Beispiel 4 wurde ein Device hergestellt, wobei als Emittersubstanz 2,7-Bis(dimethylamino)-1,6-bis(2,4-dimethoxyphenyl)-benzo[1,2-d;4,5-d']-1,2,6,7-tetrahydro-bis[1,3]oxazin-4,9-dion als 5 nm starke Schicht zwischen Loch- und Elektronenleiter eingebracht wurde.

Der Test dieses Device erfolgte ebenfalls bei einer regelbaren Spannung zwischen 0 und 15 V. Diese Vorrichtung emittiert bei 618 nm (rot). Eine Leuchtdichte von 100 cd/m<sup>2</sup> wurde bei 9.5 V erreicht. Maximal wurde eine Leuchtdichte von 644 cd/m<sup>2</sup> erreicht.

#### Beispiel 6 (Device: Substanz 1.5)

Das Device folgt dem Aufbau in den Beispielen 4 und 5. Als Emittersubstanz wurde 2,5-Bis-(N-phenylamino)-terephthalsäurediethylester eingesetzt.

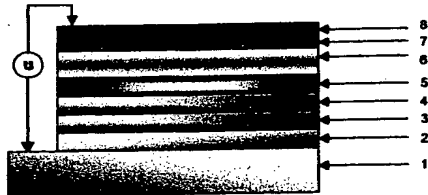
Für den Test wurde wiederum eine Spannung zwischen 0 und 15 Volt angelegt. Das Device leuchtet gelb (578 nm). Die Leuchtdichte von 100 cd/m<sup>2</sup> wurde bei 5.6 V erreicht. Maximal wurde eine Leuchtdichte von 5300 cd/m<sup>2</sup> registriert.

#### Beispiel 7 (Device: Substanz 1.2)

In Analogie zu den Beispielen 4 – 6 wurde bei gleichem Bauprinzip auf den Lochtransportschichten eine Schicht von 5 nm N,N'-Dimethyl-2,5-bis-(N-(2-fluorphenyl)-amino)terephthalsäuredimethylester abgeschieden.

Der Test dieser Anordnung erfolgte bei einer regelbaren Spannung zwischen 0 und 15 V. Das Device leuchtet grün ( $\lambda_{\max} = 547 \text{ nm}$ ). Eine Leuchtdichte von  $100 \text{ cd/m}^2$  wurde bei 5.4 V erreicht. Maximal wurde eine Leuchtdichte von  $17700 \text{ cd/m}^2$  erreicht.

#### Device-Aufbau



- 8 Elektrode (z. B. Aluminium)
- 7 Pufferschicht (z. B. 0.5 nm LiF)
- 6 Elektronenleiter (z. B. 30 nm  $\text{Alq}_3$ )
- 5 Emitterschicht  
(z. B. 5 nm Terephthalsäurederivat)
- 4 Lochleiter (z. B. 5 nm  $\alpha$ -NPD)
- 3 Lochleiter (z. B. 55 nm 1-Naphdata)
- 2 Anode (z. B. ITO)
- 1 Substrat (z. B. Glas)

Abb. 2

#### Photometrische Kenngrößen ausgewählter Emittersubstanzen

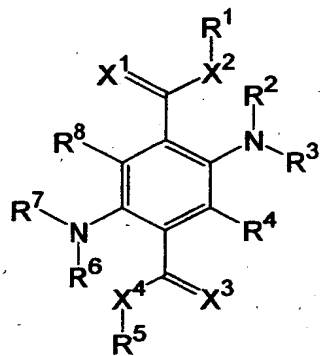
Substanz	<sup>1)</sup> V	<sup>2)</sup> nm	Farbe	<sup>3)</sup> $\text{cd/m}^2$	<sup>4)</sup> $\text{cd/A}$	<sup>5)</sup> $\text{lm/W}$
1.1	7,1	538	grün	1300	0,48	0,22
1.2	5,4	547	grün	17700	7,7	4,93
1.3	8,1	577	gelb-grün	4330	2,77	1,52
1.4	8	577	gelb-grün	1410	0,81	0,37
1.5	5,6	578	gelb	5300	1,59	1,42
16.1	6,7	540	grün	4680	3,05	1,7
16.2	6,6	564	grün	6010	0,89	0,66
16.3	6,5	565	gelb-grün	4530	0,72	0,49
16.4	5	578	gelb	11400	2,04	1,72
16.7	9,5	618	rot	644	0,11	0,1

Tab. 2

- 1) Spannung bei  $100 \text{ cd/m}^2$
- 2)  $\lambda_{\max}$  der Elektrolumineszenz
- 3) Leuchtdichte
- 4) Quanteneffizienz
- 5) Leistungseffizienz

## Patentansprüche

1. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

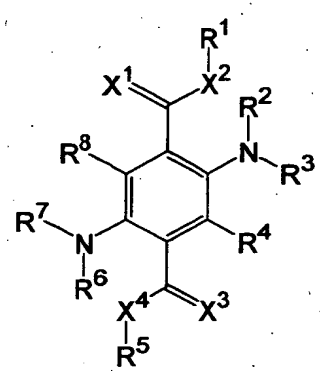
$X^1$  und  $X^3$  gleiche oder ungleiche Atome oder Gruppen, wie Sauerstoff, Schwefel, Imino, vorzugsweise Sauerstoff, sein können;

$X^2$  und  $X^4$  gleiche oder ungleiche Atome oder Gruppen, wie Sauerstoff, Schwefel, Amino, wobei der Aminostickstoff substituiert sein kann, sein können;

$R^{1-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B. Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;

$R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein können.

2. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$X^1$  und  $X^3$  gleiche oder ungleiche Atome oder Gruppen, wie Sauerstoff, Schwefel, Imino, vorzugsweise Sauerstoff, sein können;

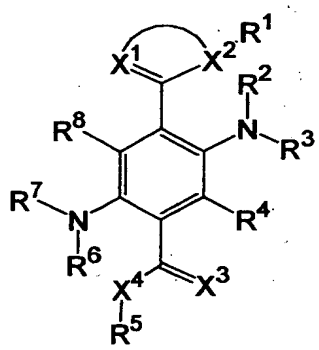
$X^2$  und  $X^4$  gleiche oder ungleiche Atome oder Gruppen, wie Sauerstoff, Schwefel, Amino, wobei der Aminostickstoff substituiert sein kann, sein können;

$R^{1-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B.

Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;

$R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^6$  und  $R^7$  gleich oder ungleich durch Trifluormethyl oder Pentafluorphenyl sowie  $R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein können.

3. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$X^1$  und  $X^2$  Glieder eines Ringes sein können,

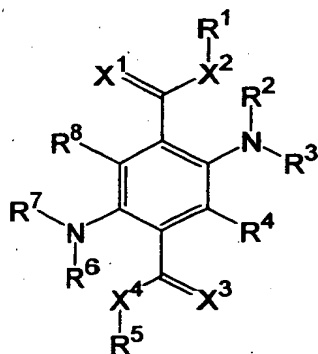
die einen gesättigten oder ungesättigten Heterocyclus mit oder ohne weitere Annelierung aufbauen und  $X^1$  gleich Imino,  $X^2$ ,  $X^3$ ,  $X^4$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder Schwefel sein können;

$R^{1-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B.

Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;

$R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein können.

4. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$X^1$  und  $X^3$  gleiche oder ungleiche Atome oder Gruppen, wie Sauerstoff, Schwefel, Imino, vorzugsweise Sauerstoff, sein können;

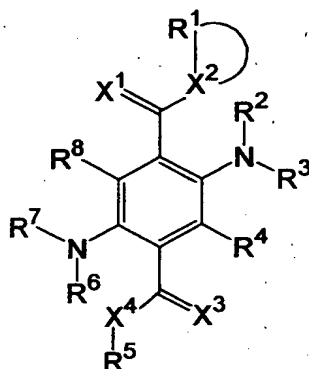
$X^2$  und  $X^4$  gleiche oder ungleiche Atome oder Gruppen, wie Sauerstoff, Schwefel, Amino, wobei der Aminostickstoff substituiert sein kann, sein können;

$R^{1-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können, und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B.

Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können

und  $R^4$  und  $R^8$  gleich oder ungleich Trifluormethyl oder Pentafluorphenyl sein können.

5. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$X^2$  und  $R^1$  Glieder eines Ringes sein können,

die einen gesättigten oder ungesättigten Heterocyclus mit oder ohne weitere

Annelierung aufbauen und  $X^1$ ,  $X^3$ ,  $X^4$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder Schwefel

und  $X^2$  gleich Amino sein können;

$R^{2-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen,

vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl,

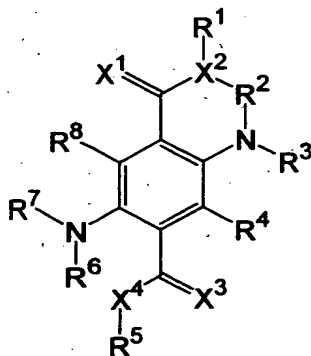
Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B.

Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;

$R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino

sein können.

6. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$X^2$  und  $R^2$  Glieder eines Ringes sein können,

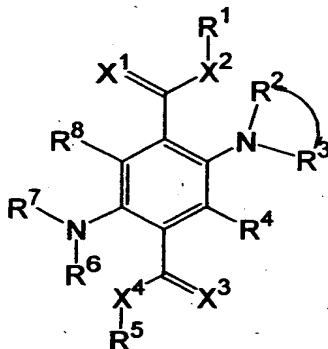
die einen annelliert Heterocyclus aufbauen und  $X^1$ ,  $X^3$ ,  $X^4$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder Schwefel und  $X^2$  gleich Amino sein können;

$R^{1, 3-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B.

Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;

$R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein können.

7. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$R^2$  und  $R^3$  Glieder eines Ringes sein können,

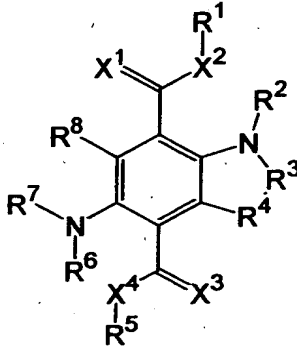
die einen gesättigten oder ungesättigten Heterocyclus mit oder ohne weitere Annelierung aufbauen und  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$ ,  $X^4$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder Schwefel sein können;

$R^{1, 4-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B.

Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;

$R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein können.

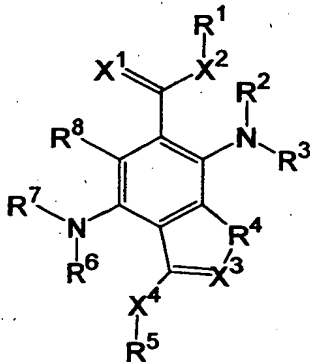
8. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$R^3$  und  $R^4$  Glieder eines Ringes sein können, die einen ankondensierten, gesättigten oder ungesättigten Heterocyclus mit oder ohne weitere Annelierung aufbauen und  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$ ,  $X^4$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder Schwefel sein können;  
 $R^{1, 2, 5-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B. Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;  
 $R^8$  ein Substituent wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein kann.

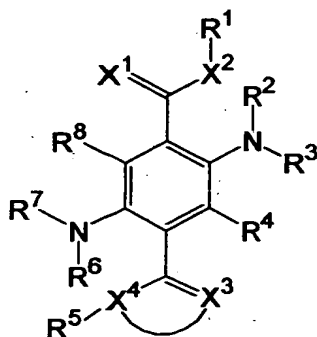
9. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$R^4$  und  $X^3$  Glieder eines Ringes sein können,  
 die einen ankondensierten, gesättigten oder ungesättigten Heterocyclus mit oder ohne  
 weitere Annelierung aufbauen und  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^4$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder  
 Schwefel und  $X^3$  gleich Imino sein können;  
 $R^{1-3, 5-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20  
 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z.  
 B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie  
 z. B. Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;  
 $R^8$  ein Substituent wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein kann.

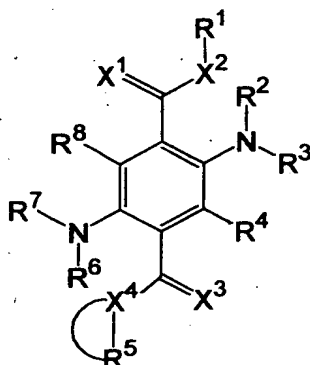
10. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen  
 der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten,  
 rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$X^3$  und  $X^4$  Glieder eines Ringes sein können,  
 die einen gesättigten oder ungesättigten Heterocyclus mit oder ohne weitere  
 Annelierung aufbauen und  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^4$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder  
 Schwefel und  $X^3$  gleich Imino sein können;  
 $R^{1-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen,  
 vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl,  
 Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B.  
 Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;  
 $R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino  
 sein können.

11. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

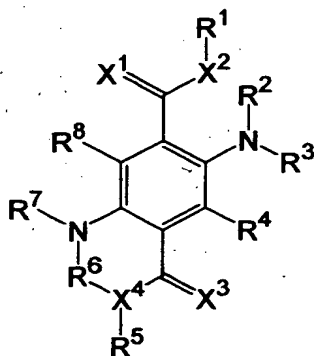
$X^4$  und  $R^5$  Glieder eines Ringes sein können,

die einen gesättigten oder ungesättigten Heterocyclus mit oder ohne weitere Annelierung aufbauen und  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder Schwefel und  $X^4$  gleich Amino sein können;

$R^{1-4, 6-8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B. Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;

$R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein können.

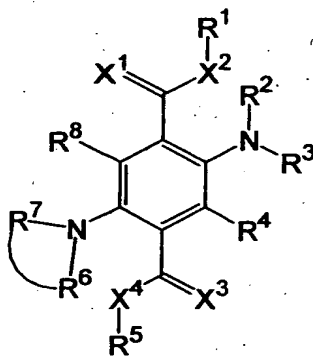
12. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$X^4$  und  $R^6$  Glieder eines Ringes sein können,  
die einen annelliert Heterocyclus aufbauen und  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder Schwefel und  $X^4$  gleich Amino sein können;  
 $R^{1-5,7,8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B. Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;  
 $R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein können.

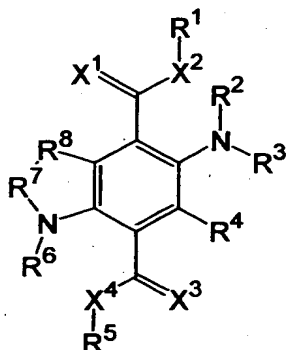
13. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$R^6$  und  $R^7$  Glieder eines Ringes sein können,  
die einen gesättigten oder ungesättigten Heterocyclus mit oder ohne weitere Annelierung aufbauen und  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$ ,  $X^4$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder Schwefel sein können;  
 $R^{1-5,8}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B. Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;  
 $R^4$  und  $R^8$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein können.

14. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



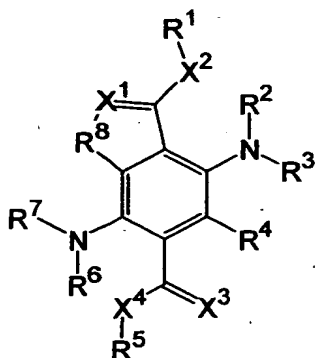
wobei

$R^7$  und  $R^8$  Glieder eines Ringes sein können, die einen ankondensierten, gesättigten oder ungesättigten Heterocyclus mit oder ohne weitere Annelierung aufbauen und  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$ ,  $X^4$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder Schwefel sein können;

$R^{1-6}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B. Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;

$R^4$  ein Substituent wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein kann.

15. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen der nachfolgenden allgemeinen Formel in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert, in einem Device enthält,



wobei

$R^8$  und  $X^1$  Glieder eines Ringes sein können,

die einen ankondensierten, gesättigten oder ungesättigten Heterocyclus mit oder ohne weitere Annelierung aufbauen und  $X^1$  gleich Imino,  $X^2$ ,  $X^3$ ,  $X^4$  gleich Amino bzw. Imino, Sauerstoff oder Schwefel sein können;

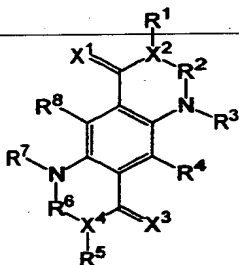
$R^{1-7}$  gleiche oder ungleiche Substituenten, wie Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Atomen, vorzugsweise C1 bis C8; Aryl, wie z. B. Phenyl oder Naphthyl, Hetaryl, wie z. B. Pyridyl, Thienyl, Furyl sein können und diese Reste durch Atome oder Gruppen wie z. B.

Dialkylamino, Methoxy, Cyano, Fluor oder Chlor substituiert sein können;

$R^4$  ein Substituent wie Halogen, Nitro, Cyano, Amino sein kann.

16. Eine organische elektrolumineszierende Vorrichtung, welche die Verbindungen aus den Ansprüchen 1 - 15 in einer oder mehreren Emitterschichten im Gemisch von 2 - 6 unterschiedlichen Vertretern, vorzugsweise 2 - 3 Vertretern, in einem Device enthält.

17. Neuartige 1,6-disubstituierte Benzo[1,2-d;4,5-d']-1,2,6,7-tetrahydro-bis[1,3]oxazin-4,9-dione und -bis[1,3]diazin-4,9-dione nachfolgender Struktur,



wobei

$X^1$  gleich O und  $X^2$  gleich O bzw. N,  $R^2$  und  $R^6$  gleich unsubstituiertes Methylen ( $-CH_2-$ ) oder substituiert wie z. B. durch Bis-(trifluormethyl),  $R^3$  und  $R^7$  verschieden H gleich Alkyl mit 1 bis 8 Atomen, vorzugsweise C1 bis C4, alicyclisch, Aryl, Hetaryl und  $R^4$  und  $R^8$  gleich H, Alkyl, Aryl, vorzugsweise Phenyl oder Naphthyl, Pyridyl, Thienyl, Furyl, insbesondere Trifluormethyl sein können.

**Zusammenfassung**

Organische elektrolumineszierende Vorrichtungen, welche als Emittersubstanzen Derivate der 2,5-Diaminoterephthalsäure in einer oder mehreren Emitterschichten, rein oder dotiert enthalten. Sie zeichnen sich durch schmale Emissionsbanden, niedrige Treiberspannungen, hohe photometrische Effizienz und hohe thermische Stabilität aus. Durch geeignete Substitution wird ein breiter Spektralbereich erfaßt. Innerhalb dieser Substanzklasse wurden neuartige 1,6-disubstituierte Benzo[1,2-d;4,5-d']-1,2,6,7-tetrahydrobis[1,3]oxazin-4,9dione und -bis[1,3]diazin-4,9-dione gefunden.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**